

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-192651

(P2001-192651A)

(43) 公開日 平成13年7月17日 (2001.7.17)

(51) Int.Cl.⁷

識別記号

F I

ターマコード (参考)

C 0 9 K 11/06

6 1 0

C 0 9 K 11/06

6 1 0

3 K 0 0 7

6 3 5

6 3 5

4 C 0 5 6

6 4 0

6 4 0

4 H 0 0 6

6 5 5

6 5 5

C 0 7 C 15/27

C 0 7 C 15/27

審査請求 未請求 請求項の数21 O L (全 23 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2000-290626 (P2000-290626)

(22) 出願日 平成12年9月25日 (2000.9.25)

(31) 優先権主張番号 特願平11-304206

(32) 優先日 平成11年10月26日 (1999.10.26)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000005201

富士写真フイルム株式会社

神奈川県南足柄市中沼210番地

(72) 発明者 五十嵐 達也

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真

フイルム株式会社内

(74) 代理人 100105647

弁理士 小栗 昌平 (外4名)

Fターム (参考) 3K007 AB02 AB18 DA02 EB00 FA00

4C056 AA01 AB01 AC02 AD03 AE03

CA04 CA24 CA28 CC01 CD01

4H006 AA01 AA03 AB92

(54) 【発明の名称】 芳香族縮環化合物、発光素子材料およびそれを使用した発光素子

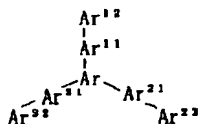
(57) 【要約】

【課題】 発光特性と耐久性が良好な発光素子およびそれを可能にする発光素子材料並びにそれを用いた発光素子を提供する。

【解決手段】 一般式 (1) で表される化合物を用いる。

【化1】

一般式 (1)



式中、 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} はアリーレン基を表し、 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} は置換基または水素原子を表す。 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} の少なくとも一つは縮環アリーレン構造または縮環ヘテロアリーレン構造である。 Ar はアリーレン基またはヘテロアリーレン基を表す。

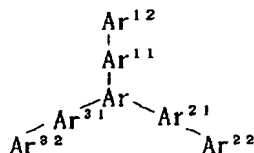
BEST AVAILABLE COPY

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式（1）で表される化合物からなる発光素子材料。

【化1】

一般式（1）

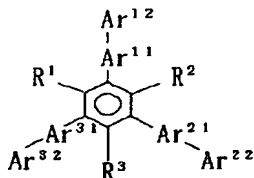


式中、 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} はアリーレン基を表し、 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} は置換基または水素原子を表す。 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} の少なくとも一つは縮環アリーレン構造または縮環ヘテロアリーレン構造である。 Ar はアリーレン基またはヘテロアリーレン基を表す。

【請求項2】 下記一般式（2）で表される化合物からなる発光素子材料。

【化2】

一般式（2）



式中、 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} はアリーレン基を表し、 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} は置換基または水素原子を表す。 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} の少なくとも一つは縮環アリーレン構造または縮環ヘテロアリーレン構造であることを特徴とする請求項1または2に記載の発光素子材料。

【請求項3】 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} の少なくとも一つがフェナントレン構造、4環以上の縮環アリーレン構造または3環以上の縮環ヘテロアリーレン構造であることを特徴とする請求項1または2に記載の発光素子材料。

【請求項4】 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} がフェナントリレン基または4環以上の縮環アリーレン基であることを特徴とする請求項1, 2または3に記載の発光素子材料。

【請求項5】 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} が縮環アリーレン基であることを特徴とする請求項1, 2, 3, または4に記載の発光素子材料。

【請求項6】 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} が3環以上の縮環アリーレン基であることを特徴とする請求項1, 2, 3, または4に記載の発光素子材料。

【請求項7】 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} がフェナントリレン基、または4環以上の縮環アリーレン基であることを特徴とする請求項1, 2, 3, または4に記載の発光素子材料。

(2)

特開2001-192651

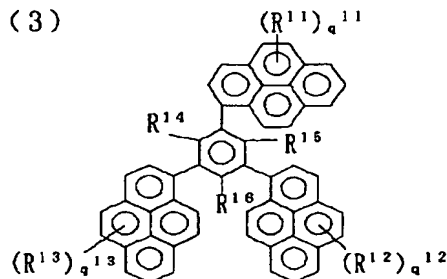
2

【請求項8】 炭素原子、水素原子のみから構成されている請求項1, 2, 3, 4, 5, 6, または7に記載の発光素子材料。

【請求項9】 一般式（3）で表される化合物。

【化3】

一般式（3）



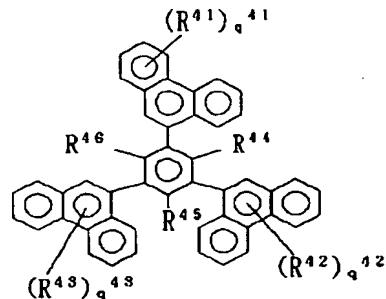
式中、 R^{11} , R^{12} , R^{13} は置換基を表す。 R^{14} , R^{15} , R^{16} は水素原子または置換基を表す。 q^{11} , q^{12} , q^{13} は0~9の整数を表す。

【請求項10】 請求項9に記載の一般式（3）で表される化合物から成る発光素子材料。

20 【請求項11】 一般式（4）で表される化合物。

【化4】

一般式（4）



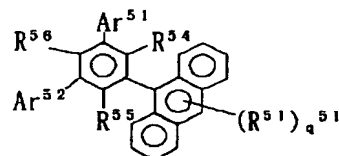
式中、 R^{41} , R^{42} , R^{43} は置換基を表す。 R^{44} , R^{45} , R^{46} は水素原子または置換基を表す。 q^{41} , q^{42} , q^{43} は0~9の整数を表す。

【請求項12】 請求項11に記載の一般式（4）で表される化合物から成る発光素子材料。

【請求項13】 一般式（5）で表される化合物。

【化5】

一般式（5）



式中、 R^{51} は置換基を表し、 R^{54} , R^{55} , R^{56} は水素原子または置換基を表す。 Ar^{51} はアンスリル基、フェナントリル基、または、ビレニル基を表し、 Ar^{52} はフェナントリル基、または、ビレニル基を表す。 q^{51} は0~9の整数を表す。

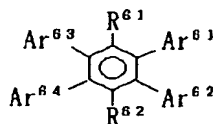
50 【請求項14】 請求項13に記載の一般式（5）で表

される化合物から成る発光素子材料。

【請求項15】 一般式(6)で表される発光素子材料。

【化6】

一般式(6)

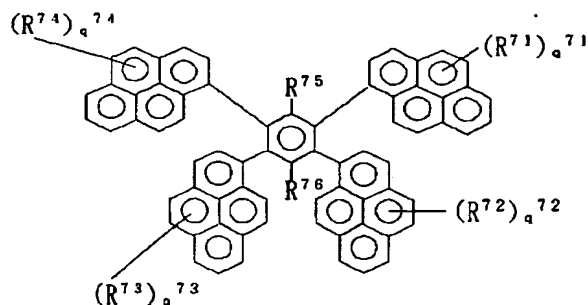


式中、 R^{61} , R^{62} は水素原子または置換基を表す。 $A r^{61}$, $A r^{62}$, $A r^{63}$, $A r^{64}$ は縮環アリール基を表す。

【請求項16】 一般式(7)で表される化合物。

【化7】

一般式(7)

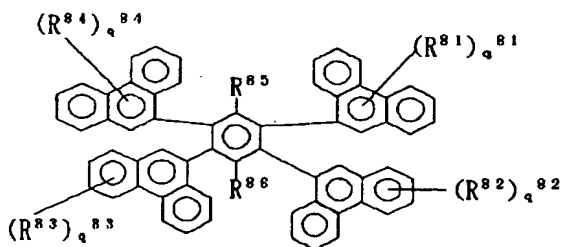


10

20

*

一般式(8)



式中、 R^{81} , R^{82} , R^{83} , R^{84} は置換基を表し、 R^{85} , R^{86} は水素原子または置換基を表す。 q^{81} , q^{82} , q^{83} , q^{84} は0～9の整数を表す。

【請求項19】 請求項18に記載の一般式(8)で表される化合物から成る発光素子材料。

【請求項20】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が請求項1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 10, 12, 14, 15, 17, または19に記載の発光素子材料を少なくとも一種含有する層であることを特徴とする発光素子。

【請求項21】 請求項1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 10, 12, 14, 15, 17, または19に記載の発光素子材料を含む層を塗布プロセスで成膜することを特徴とする請求項20に記載の有機発光素子。

(3)

特開2001-192651

4

*式中、 R^{71} , R^{72} , R^{73} , R^{74} は置換基を表し、 R^{75} , R^{76} は水素原子または置換基を表す。 q^{71} , q^{72} , q^{73} , q^{74} は0～9の整数を表す。

【請求項17】 請求項16に記載の一般式(7)で表される化合物から成る発光素子材料。

【請求項18】 一般式(8)で表される化合物。

【化8】

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、芳香族縮環化合物、電気エネルギーを光に変換して発光できる発光素子用材料および発光素子に関し、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア等の分野に好適に使用できる発光素子に関する。

【0002】

【従来の技術】 今日、種々の表示素子に関する研究開発が活発であり、中でも有機電界発光(EL)素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な表示素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜を形成する発光素子が知られている

(アプライド フィジックス レターズ, 51巻, 91

3頁, 1987年)。この文献に記載された発光素子はトリス(8-ヒドロキシキノリナト)アルミニウム錯体(A1q)を電子輸送材料として用い、正孔輸送材料(アミン化合物)と積層させることにより、従来の単層型素子に比べて発光特性を大幅に向上させている。近年、有機EL素子をフルカラーディスプレイへと適用することが活発に検討されているが、高性能フルカラーディスプレイを開発する為には青・緑・赤、それぞれの発光素子の特性を向上する必要がある。例えば、青色発光素子においては、「有機EL素子とその工業化最前線」(エヌ・ティー・エス社) p38に記載のジスチルアリーレン化合物(DPVBi)などが広範に検討されているが、色純度、耐久性、発光輝度、効率の点で問題があり、改良が望まれていた。

【0003】有機発光素子において高輝度発光を実現しているものは有機物質を真空蒸着によって積層している素子であるが、製造工程の簡略化、加工性、大面積化等の観点から塗布方式による素子作製が望ましい。しかしながら、従来の塗布方式で作製した素子では特に青色発光素子では、発光輝度、発光効率の点で蒸着方式で作製した素子に劣っており、新規青色発光材料の開発が望まれていた。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、発光特性、耐久性が良好な発光素子およびそれを可能にする発光素子用材料の提供にある。

【0005】

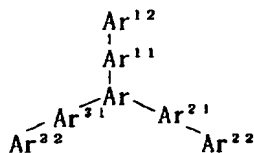
【課題を解決するための手段】この課題は下記手段によって達成された。

【1】下記一般式(1)で表される化合物からなる発光素子材料。

【0006】

【化9】

一般式(1)



【0007】式中、Ar¹¹, Ar²¹, Ar³¹ はアリーレン基を表し、Ar¹², Ar²², Ar³² は置換基または水素原子を表す。Ar¹¹, Ar²¹, Ar³¹, Ar¹², Ar²², Ar³² の少なくとも一つは縮環アリーレン構造または縮環ヘテロアリーレン構造である。Arはアリーレン基またはヘテロアリーレン基を表す。

【2】下記一般式(2)で表される化合物からなる発光素子材料。

【0008】

【化10】

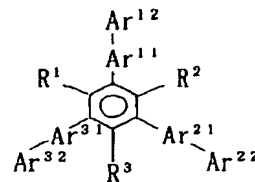
10

20

30

40

一般式(2)



【0009】式中、Ar¹¹, Ar²¹, Ar³¹ はアリーレン基を表し、Ar¹², Ar²², Ar³² は置換基または水素原子を表す。Ar¹¹, Ar²¹, Ar³¹, Ar¹², Ar²², Ar³² の少なくとも一つは縮環アリーレン構造または縮環ヘテロアリーレン構造である。R¹, R², R³ は水素原子または置換基を表す。

【3】Ar¹¹, Ar²¹, Ar³¹, Ar¹², Ar²², Ar³² の少なくとも一つがフェナントレン構造、4環以上の縮環アリーレン構造または3環以上の縮環ヘテロアリーレン構造であることを特徴とする【1】、【2】に記載の発光素子材料。

【4】Ar¹¹, Ar²¹, Ar³¹ がフェナントリレン基または4環以上の縮環アリーレン基であることを特徴とする【1】、【2】、【3】に記載の発光素子材料。

【5】Ar¹², Ar²², Ar³² が縮環アリーレン基であることを特徴とする【1】、【2】、【3】、【4】に記載の発光素子材料。

【6】Ar¹², Ar²², Ar³² が3環以上の縮環アリーレン基であることを特徴とする【1】、【2】、【3】、【4】に記載の発光素子材料。

【7】Ar¹², Ar²², Ar³² がフェナントリレン基、4環以上の縮環アリーレン基であることを特徴とする【1】、【2】、【3】、【4】に記載の発光素子材料。

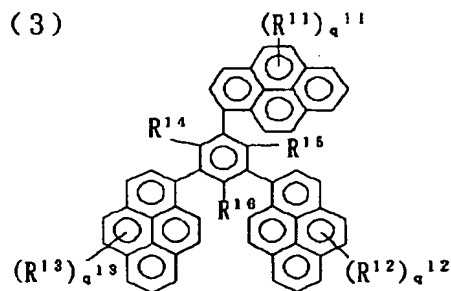
【8】炭素原子、水素原子のみから構成される【1】、【2】、【3】、【4】、【5】、【6】、【7】に記載の発光素子材料。

【9】一般式(3)で表される化合物。【0010】

【化11】

一般式(3)

一般式(3)

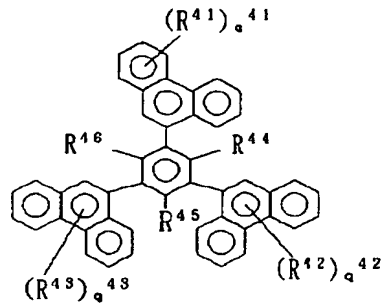


[11] 一般式(4)で表される化合物。

【0012】

【化12】

一般式(4)



【0013】式中、 R^{41} , R^{42} , R^{43} は置換基を表す。
 R^{44} , R^{45} , R^{46} は水素原子または置換基を表す。
 q^{41} , q^{42} , q^{43} は0~9の整数を表す。

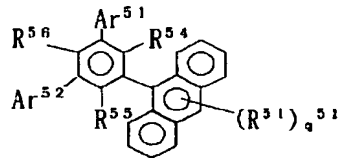
[12] [11]に記載の一般式(4)で表される化合物から成る発光素子材料。

[13] 一般式(5)で表される化合物。

【0014】

【化13】

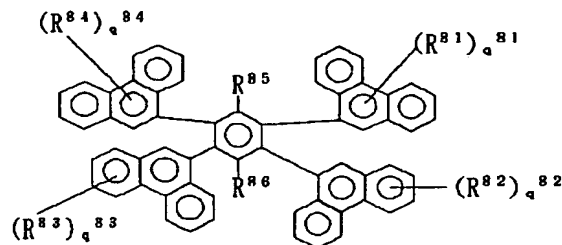
一般式(5)



【0015】式中、 R^{51} は置換基を表し、 R^{54} , R^{55} , R^{56} は水素原子または置換基を表す。 Ar^{51} はアンスリル基、フェナントリル基、または、ピレニル基を表し、 Ar^{52} はフェナントリル基、または、ピレニル基を表す。 q^{51} は0~9の整数を表す。

[14] [13]に記載の一般式(5)で表される化合物から成る発光素子材料。

一般式(8)



【0021】式中、 R^{81} , R^{82} , R^{83} , R^{84} は置換基を表し、 R^{85} , R^{86} は水素原子または置換基を表す。 q^{81} , q^{82} , q^{83} , q^{84} は0~9の整数を表す。

[19] [18]に記載の一般式(8)で表される化合物から成る発光素子材料。

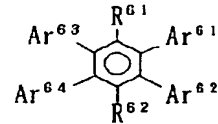
[20] 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少

* [15] 一般式(6)で表される発光素子材料。

【0016】

【化14】

一般式(6)



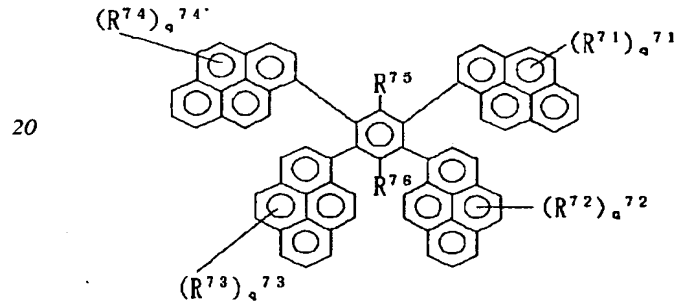
10 【0017】式中、 R^{61} , R^{62} は水素原子または置換基を表す。 Ar^{61} , Ar^{62} , Ar^{63} , Ar^{64} は縮環アリール基を表す。

[16] 一般式(7)で表される化合物。

【0018】

【化15】

一般式(7)



【0019】式中、 R^{71} , R^{72} , R^{73} , R^{74} は置換基を表し、 R^{75} , R^{76} は水素原子または置換基を表す。 q^{71} , q^{72} , q^{73} , q^{74} は0~9の整数を表す。

30 [17] [16]に記載の一般式(7)で表される化合物から成る発光素子材料。

[18] 一般式(8)で表される化合物。

【0020】

【化16】

*

なくとも一層が[1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [10], [12], [14], [15], [17], [19]に記載の発光素子材料を少なくとも一種含有する層であることを特徴とする発光素子。

[21] [1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [10], [12], [1

4], [15], [17], [19]に記載の発光素子材料を含む層を塗布プロセスで成膜することを特徴とする[20]に記載の有機発光素子。

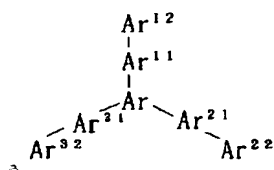
【0022】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。

【0023】

【化17】

一般式(1)



【0024】一般式(1)について説明する。 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} はアリーレン基を表す。アリーレン基の炭素数は6~30が好ましく、6~20がより好ましく、6~16がさらに好ましい。アリーレン基としては、例えば、フェニレン基、ナフチレン基、アンスリレン基、フェナントレニレン基、ピレニレン基、ペリレニレン基、フルオレニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、ルブレニレン基、クリセニレン基、トリフェニレニレン基、ベンゾアンスリレン基、ベンゾフェナントレニレン基、ジフェニルアンスリレン基などが挙げられ、これらのアリーレン基はさらに置換基を有しているも良い。

【0025】アリーレン基上の置換基としては、例えば、アルキル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメチル、エチル、i s o -プロピル、t e r t -ブチル、n -オクチル、n -デシル、n -ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチル、アントラニルなどが挙げられる。)、アミノ基(好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~20、特に好ましくは炭素数0~10であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例

えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、アリールオキシ基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。)、ヘテロアリールオキシ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばピリジルオキシ、ピラジリルオキシ、ピリミジリルオキシ、キノリルオキシなどが挙げられる。)、アシル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特

【0026】に好ましくは炭素数1~12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニル基(好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~20、特に好ましくは炭素数0~12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられ

る。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、ヘテロアリールチオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好

【0027】ましくは炭素数1~12であり、例えばビリジルチオ、2-ベンズイミゾリルチオ、2-ベンズオキサゾリルチオ、2-ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシ基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリル基、アゼビニル基などが挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。))などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。

【0028】 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} は好ましくはフェニレン基、ナフチレン基、アンスリレン基、フェナントレニレン基、ビフェニレン基、4環以上のアリーレン基(例えばビレニレン基、ペリレニレン基)、であり、より好ましくは、フェニレン基、ナフチレン基、フェナントレニレン基、4環以上のアリーレン基であり、さらに好ましくは、フェニレン基、フェナントリレン基、ビレニレン基であり、特に好ましくは、ビレニレン基である。

【0029】 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} は置換基または水素原子を表す。置換基としては、前記 Ar^{11} 上の置換基で説明した基が挙げられる。 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} として好ましくは水素原子、アリール基、ヘテロアリール基、アルキル基、アルケニル基であり、より好まし

くは、水素原子、アリール基、ヘテロアリール基であり、さらに好ましくは水素原子、アリール基であり、特に好ましくは、水素原子、ビレニル基である。

【0030】 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} の少なくとも一つは縮環アリール構造または縮環ヘテロアリール構造である。 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} の少なくとも一つが縮環アリール構造であることが好ましい。縮環アリール構造としては、好ましくは、ナフタレン構造、アントラセン構造、フェナントレン構造、ビレン構造、ペリレン構造、より好ましくは、ナフタレン構造、アントラセン構造、ビレン構造、フェナントレン構造であり、さらに好ましくは、フェナントレン構造、4環以上のアリール構造であり、特に好ましくは、ビレン構造である。

【0031】縮環ヘテロアリール構造としては、好ましくはキノリン構造、キノキサリン構造、キナゾリン構造、アクリジン構造、フェナントリジン構造、フタラジン構造、フェナントロリン構造であり、より好ましくは、キノリン構造、キノキサリン構造、キナゾリン構造、フタラジン構造、フェナントロリン構造である。

【0032】 Ar はアリーレン基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは6~20、さらに好ましくは炭素数6~16、例えばフェニレン基、ナフチレン基、アントラセニレン基、フェナントレニレン基、ビレニレン基、トリフェニレン基などが挙げられる。)、ヘテロアリーレン基(ヘテロ原子として好ましくは窒素原子、硫黄原子、酸素原子、より好ましくは窒素原子、好ましくは炭素数2~30より好ましくは炭素数3~20、さらに好ましくは炭素数3~16、例えばビリジレン基、ピラジレン基、チオフェニレン基、キノリレン基、キノキサリレン基、トリアジレン基などが挙げられる)を表し、これらの基は置換基を有していても良い。置換基としては例えば、前記 Ar^{11} 上の置換基で説明した基が挙げられる。 Ar はフェニレン基、ナフチレン基、アントラセニレン基、ビレニレン基、トリフェニレン基であることが好ましく、フェニレン基であることがより好ましく、無置換(Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} は置換されている)フェニレン基、アルキル置換フェニレン基であることがさらに好ましい。

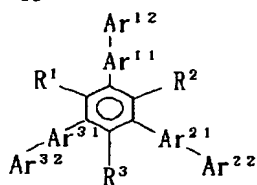
【0033】一般式(1)で表される化合物の好ましい形態は、一般式(2)で表される化合物、一般式(6)で表される化合物であり、より好ましい形態は、一般式(3)で表される化合物、一般式(4)で表される化合物、一般式(5)で表される化合物、一般式(7)で表される化合物、一般式(8)で表される化合物であり、さらに好ましい形態は一般式(3)で表される化合物である。また、本発明の化合物は、炭素原子、水素原子のみから構成されている化合物が好ましい。

【0034】

【化18】

一般式(2)

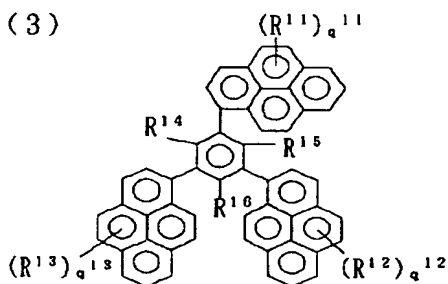
13



【0035】

【化19】

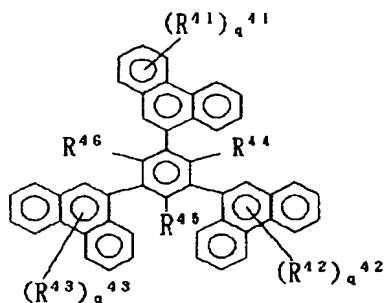
一般式(3)



【0036】

【化20】

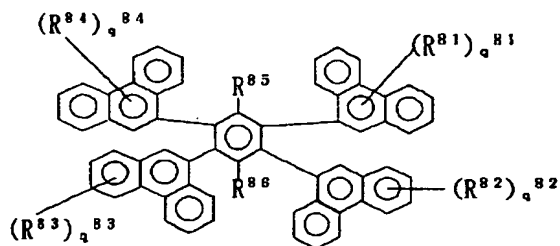
一般式(4)



【0037】

【化21】

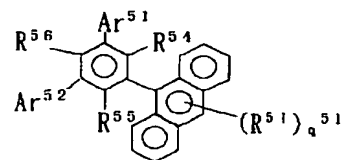
一般式(8)



【0041】一般式(2)について説明する。一般式(2)の Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} 基は一般式(1)で説明した Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} 基とそれぞれ同義であり、好ましい範囲も同じである。 R^1 , R^2 , R^3 は水素原子または置換基を表す。置換基としては、前記 Ar^{11} 上の置換基で説明した基が挙げられる。 R^1 , R^2 , R^3 は好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基である。

【0042】一般式(1), (2)で表される化合物は Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} の

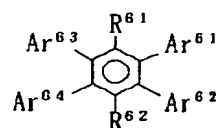
* 一般式(5)



【0038】

【化22】

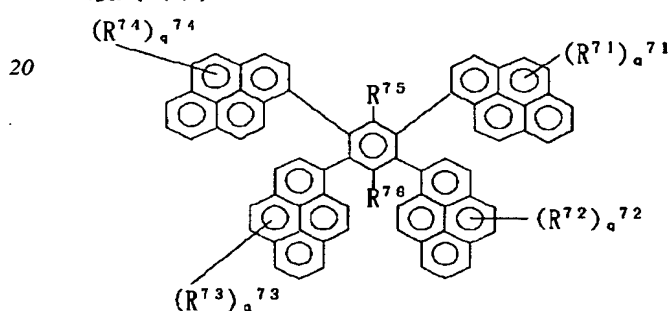
一般式(6)



【0039】

【化23】

一般式(7)



【0040】

【化24】

* 30

40 少なくとも一つがフェナントレン構造、4環以上の縮環アリール構造または3環以上の縮環ヘテロアリール構造の化合物が好ましく、フェナントレン構造、ピレン構造がより好ましい。また、一般式(1), (2)で表される化合物は Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} が縮環アリール基または水素原子である化合物が好ましく、 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} が3環以上の縮環アリール基または水素原子であることがより好ましく、 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} がフェナントレン構造、4環以上の縮環アリール構造、水素原子であることが更に好ましい。また、一般式(1), (2)で表される化合物は Ar^{11} , Ar^{21} ,

Ar^{31} がフェナントリレン基または4環以上の縮環アリーレン基である化合物が好ましい。

【0043】一般式(1), (2)で表される化合物は、炭素原子、水素原子のみから構成されている化合物が好ましい。

【0044】一般式(3)について説明する。 R^{11} , R^{12} , R^{13} は置換基を表す。置換基としては、前記 Ar^{11} 上の置換基で説明した基が挙げられる。 R^{11} , R^{12} , R^{13} は好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリー
10 基、ヘテロアリール基、アルコキシ基であり、より好ましくは、アルキル基、アリール基であり、さらに好ましくは、アリール基である。

【0045】 q^{11} , q^{12} , q^{13} は0~9の整数を表す。 q^{11} , q^{12} , q^{13} は好ましくは0~3の整数であり、より好ましくは0~2の整数であり、さらに好ましくは0, 1である。

【0046】 R^{14} , R^{15} , R^{16} は前記 R^1 と同義であり、好ましい範囲も同じである。

【0047】一般式(4)について説明する。 R^{41} , R^{42} , R^{43} は前記 R^1 と同義であり、好ましい範囲も同じ
20 である。 R^{44} , R^{45} , R^{46} は前記 R^{11} と同義であり、好ましい範囲も同じである。 q^{41} , q^{42} , q^{43} は0~9の整数を表し、好ましくは0~3の整数であり、より好ましくは0~2の整数であり、さらに好ましくは0, 1である。

【0048】一般式(5)について説明する。 R^{51} は前記 R^{11} と同義であり、好ましい範囲も同じである。

R^{54} , R^{55} , R^{56} は前記 R^1 と同義であり、好ましい範囲も同じである。 Ar^{51} はアンスリル基、フェナントリル基、ビレニル基を表し、 Ar^{52} はフェナントリル基、
30 ビレニル基を表す。 Ar^{51} はフェナントリル基、ビレニル基が好ましく、ビレニル基がより好ましい。 Ar^{52} はビレニル基が好ましい。 q^{51} は0~9の整数を表し、好ましくは0~3の整数であり、より好ましくは0~2の整数であり、さらに好ましくは0, 1である。

【0049】一般式(6)について説明する。 R^{61} , R^{62} は前記 R^1 と同義であり、好ましい範囲も同じである。 Ar^{61} , Ar^{62} , Ar^{63} , Ar^{64} は縮環アリール

基を表し、好ましくはフェナントリル基、4環以上のアリール基であり、より好ましくは、フェナントリル基、ビレニル基である。

【0050】一般式(7)について説明する。 R^{71} , R^{72} , R^{73} , R^{74} は前記 R^{11} と同義であり、好ましい範囲も同じである。 R^{75} , R^{76} は前記 R^1 と同じであり、好
ましい範囲も同じである。 q^{71} , q^{72} , q^{73} , q^{74} は0~9の整数を表し、好ましくは0~3の整数であり、より好ましくは0~2の整数であり、さらに好ましくは0, 1である。

【0051】一般式(8)について説明する。 R^{81} , R^{82} , R^{83} , R^{84} は前記 R^{11} と同義であり、好ましい範囲も同じである。 R^{85} , R^{86} は前記 R^1 と同じであり、好
ましい範囲も同じである。 q^{81} , q^{82} , q^{83} , q^{84} は0~9の整数を表し、好ましくは0~3の整数であり、より好ましくは0~2の整数であり、さらに好ましくは0, 1である。

【0052】本発明の化合物は低分子化合物であっても良く、また、オリゴマー化合物、ポリマー化合物(重量平均分子量(ポリスチレン換算)は好ましくは1000~
5000000、より好ましくは2000~1000000、さらに好ましくは3000~1000000である。)であっても良い。ポリマー化合物の場合、一般式(1)~一般式(8)で表される構造がポリマー主鎖中に含まれても良く、また、ポリマー側鎖に含まれていても良い。また、ポリマー化合物の場合、ホモポリマー化合物であっても良く、共重合体であっても良い。本発明の化合物は低分子化合物が好ましい。

【0053】本発明の化合物は、その蛍光スペクトルの λ_{max} (最大発光波長)が400~500nmであることが好ましく、400~480nmであることがより
好ましく、400~460nmであることがさらに好ましい。

【0054】次に本発明の化合物の化合物例を示すが、本発明はこれに限定されない。

【0055】

【化25】

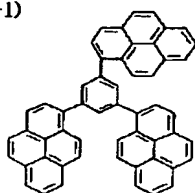
(10)

特開 2 0 0 1 - 1 9 2 6 5 1

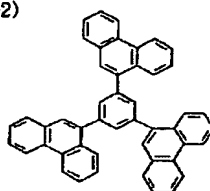
18

17

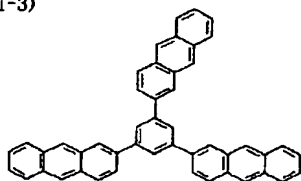
(1-1)



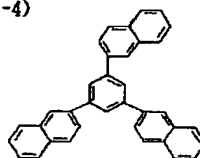
(1-2)



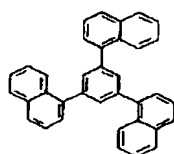
(1-3)



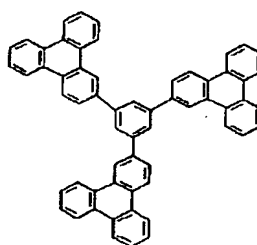
(1-4)



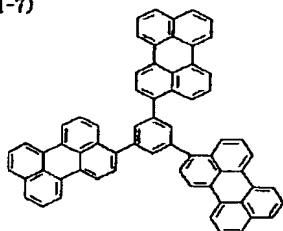
(1-5)



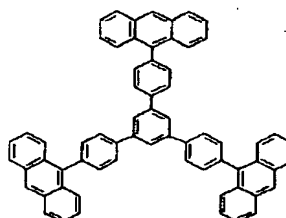
(1-6)



(1-7)

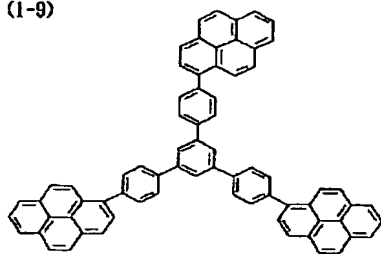


(1-8)

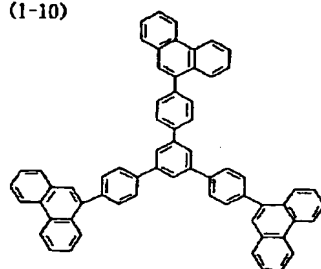


【 0 0 5 6 】

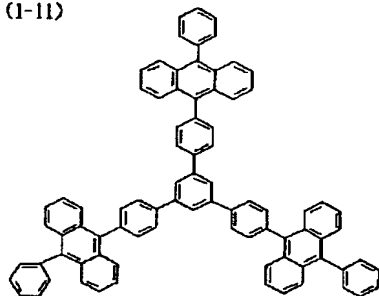
【 化 2 6 】

19
(1-9)

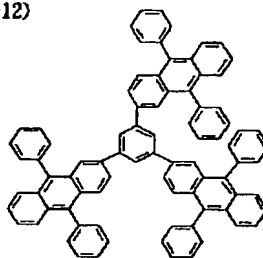
(1-10)



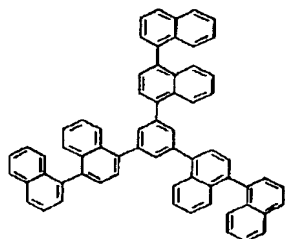
(1-11)



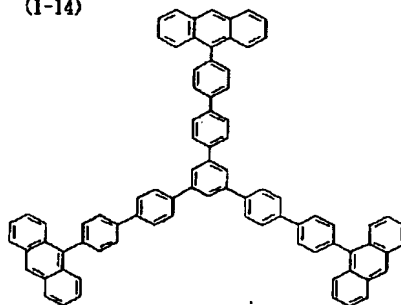
(1-12)



(1-13)



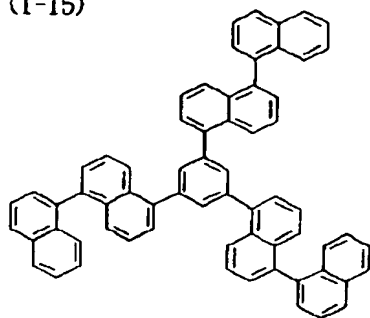
(1-14)



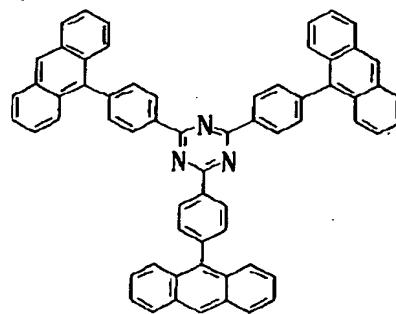
【0057】

【化27】

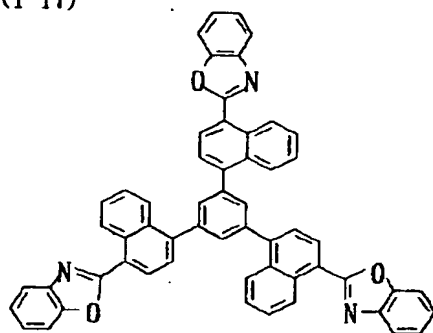
(1-15)



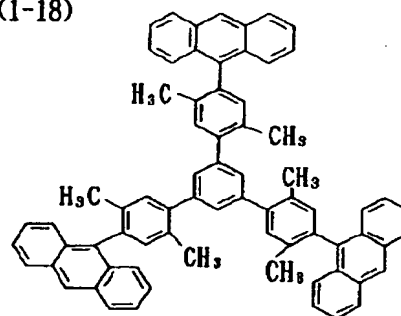
(1-16)



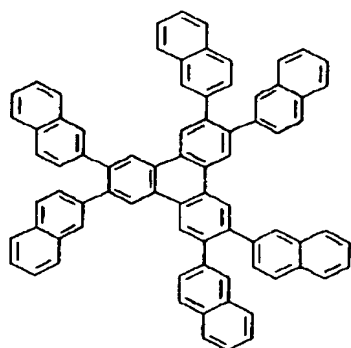
(1-17)



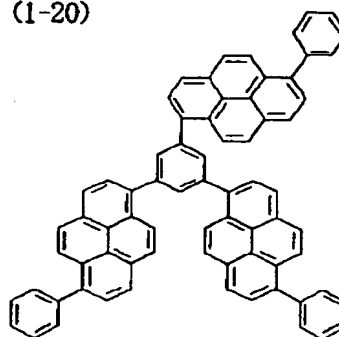
(1-18)



(1-19)



(1-20)



【0058】

【化28】

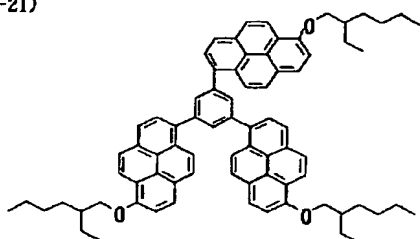
(13)

特開 2001-192651

24

(1-21)

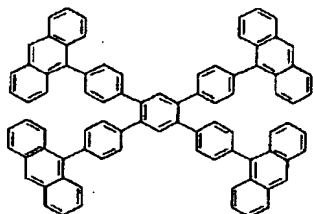
23



* 【0059】

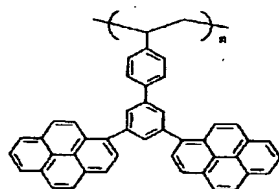
【化29】

(1-22)



10

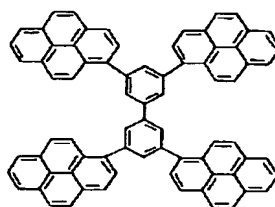
(1-23)



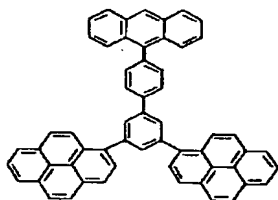
ポリスチレン換算分子量M_w=4200

*

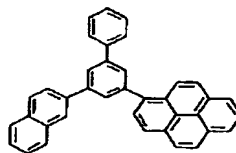
(1-24)



(1-25)



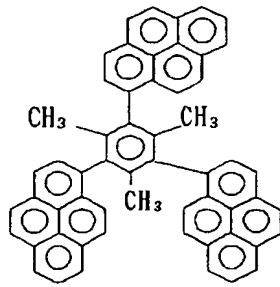
(1-26)



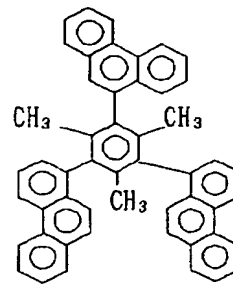
【0060】

【化30】

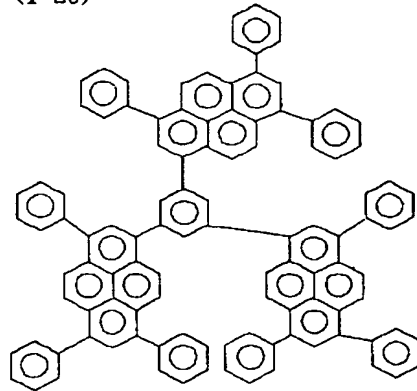
25
(1-27)



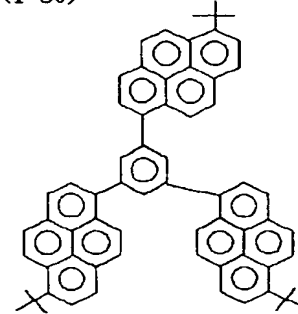
(1-28)



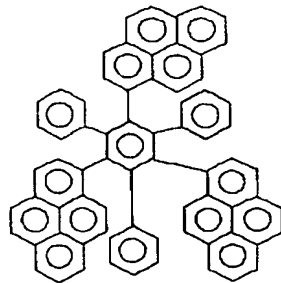
(1-29)



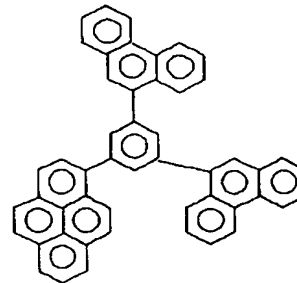
(1-30)



(1-31)



(1-32)



【0061】

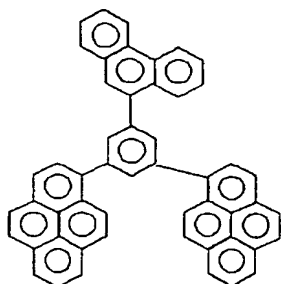
【化31】

(15)

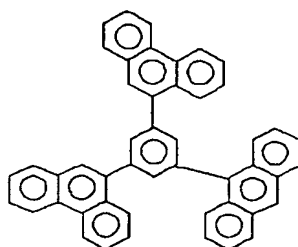
特開 2 0 0 1 - 1 9 2 6 5 1

28

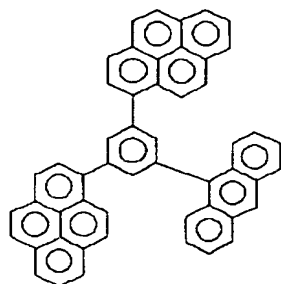
27
(1-33)



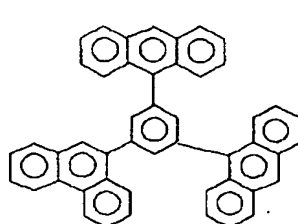
(1-34)



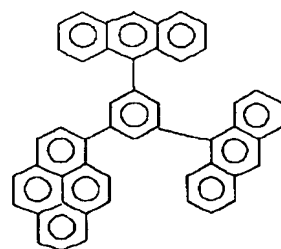
(1-35)



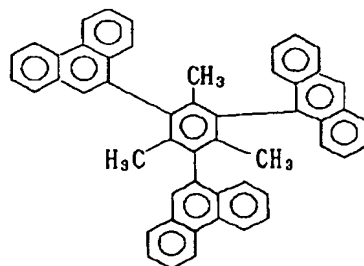
(1-36)



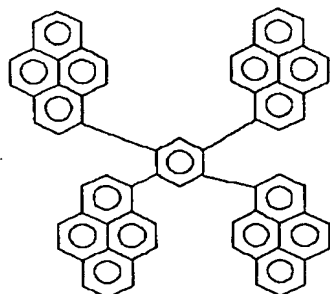
(1-37)



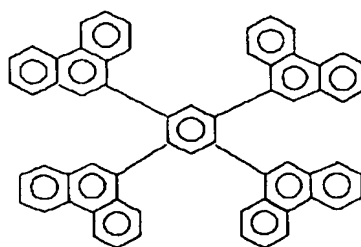
(1-38)



(1-39)

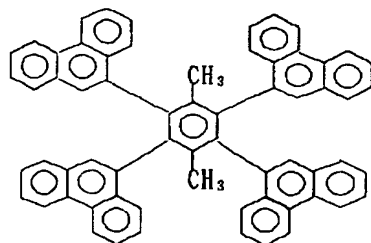


(1-40)

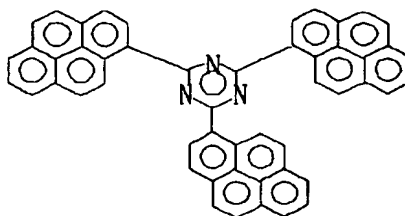


【 0 0 6 2 】

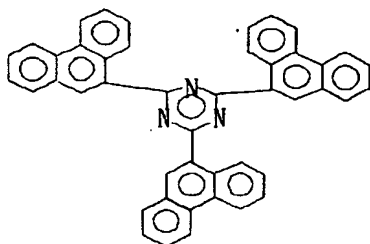
【 化 3 2 】

29
(1-41)

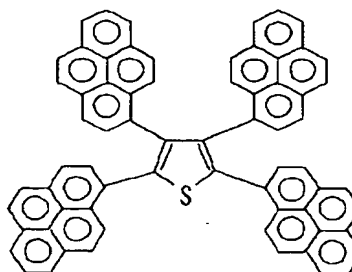
(1-42)



(1-43)



(1-44)



【0063】次に、本発明の化合物の製造方法について述べる。本発明の化合物は、種々の公知の芳香族炭素炭素結合生成反応を利用して合成可能であり、例えば、Organic Synthesis Reaction Guide (John Wiley & Sons, Inc. 社) p. 617~p. 643、及び、Comprehensive Organic Transformation (VCH社) p. 5~p. 103などに記載されている手法を利用して合成することができる。パラジウム触媒存在下炭素炭素結合を生成する合成法好ましく、ホウ酸誘導体とアリールハライド誘導体をパラジウム触媒存在下合成する手法がさらに好ましい。

【0064】ホウ酸誘導体としては、置換または無置換のアリールホウ酸誘導体（例えば、1, 4-フェニルジホウ酸、4, 4'-ビフェニルジホウ酸、ビレンホウ酸誘導体、フェナントレンホウ酸誘導体等が挙げられる）、ヘテロアリールホウ酸誘導体（例えばピリジルジホウ酸などが挙げられる）などが挙げられる。

【0065】アリールハライド誘導体のハロゲン原子は、好ましくは塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子であり、特に好ましくは臭素原子である。

【0066】パラジウム触媒としては、特に限定しないが、例えば、パラジウムテトラキストリフェニルホスフィン、パラジウムカーボン、酢酸パラジウム、パラジウムジクロライド (dppf) (dppf: 1, 1'-ビスジフェニルホスフィノフェロセン) などが挙げられる。トリフェニルホスフィンなどの配位子を同時に添加しても良い。

【0067】本反応は、塩基を用いたほうが好ましい。

用いる塩基の種類は特に限定しないが、例えば、炭酸ナトリウム、酢酸ナトリウム、トリエチルアミンなどが挙げられる。用いる塩基の量は特に限定しないが、ホウ酸（エステル）部位に対して、好ましくは0.1~20当量、特に好ましくは1~10当量である。

【0068】本反応は溶媒を用いた方が好ましい。用いる溶媒は特に限定しないが、例えば、エタノール、水、エチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジメチルホルムアミド、トルエン、テトラヒドロフラン及びそれらの混合溶媒を用いることができる。

【0069】次に、本発明の化合物を含有する発光素子に関して説明する。本発明の発光素子は、本発明の化合物を利用する素子であればシステム、駆動方法、利用形態など特に問わないが、本発明の化合物からの発光を利用するもの、または本化合物を電荷輸送材料として利用する物が好ましい。代表的な発光素子として有機EL（エレクトロルミネッセンス）素子を挙げることができる。

【0070】本発明の化合物を含有する発光素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、印刷法などの方法が用いられ、特性面、製造面で抵抗加熱蒸着、コーティング法が好ましい。

【0071】本発明の発光素子は陽極、陰極の一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有し

てもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

【0072】陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ（ITO）等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～500 nmである。

【0073】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートをしたものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2 mm以上、好ましくは0.7 mm以上のものを用いる。陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ゾルゲル法など）、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0074】陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属ハロゲン化物、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K等）及びそのフッ化物または酸化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）及びそのフッ化物または酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム

一銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イットリウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4 eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極は、上記化合物及び混合物の単層構造だけでなく、上記化合物及び混合物を含む積層構造を取ることもできる。例えば、アルミニウム/フッ化リチウム、アルミニウム/酸化リチウムの積層構造が好ましい。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～1 μmである。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百Ω/□以下が好ましい。

【0075】発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよく、また、一重項励起子、または、三重項励起子のいずれから発光する物であっても良い。例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタリイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物、有機シラン誘導体、本発明の化合物等が挙げられる。発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法、LB法などの方法が用いられ、好まし

くは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。

【0076】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、有機シラン誘導体、カーボン膜、本発明の化合物等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm~5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm~1 μmであり、更に好ましくは10 nm~500 nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔注入輸送材料を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、インクジェット法、印刷法が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0077】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノ誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレン、ペリレン等の芳香環テトラカルボン酸無水物、フタロシアン誘導体、8-キノ

リノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体、有機シラン誘導体、本発明の化合物等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm~5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm~1 μmであり、更に好ましくは10 nm~500 nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送材料を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、インクジェット法、印刷法などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0078】保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等の金属酸化物、MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレタン、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のモノマーを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE(分子線エピタキシ)法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法(高周波励起イオンプレーティング法)、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、印刷法を適用できる。

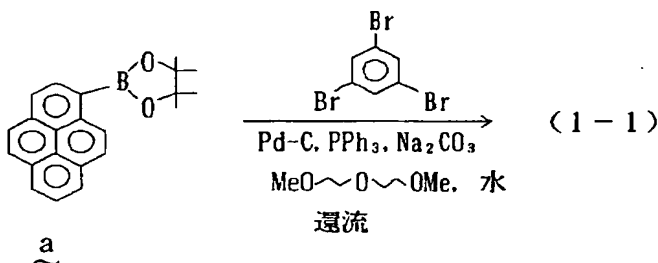
【0079】

【実施例】以下に本発明の具体的実施例を述べるが、本発明の実施の態様はこれらに限定されない。

(1-1)の合成

ピレンホウ酸エステル a 1.0 g、1,3,5-トリプロモベンゼン 0.29 g、炭酸ナトリウム 0.6 g、トリフェニルホスフィン 0.05 g、パラジウムカーボン 0.05 gにジエチレングリコールジメチル

エーテル 20 ml、水 20 ml を加え還流撹拌した。6 時間後、反応溶液をクロロホルム 200 ml、水 200 ml で希釈し、セライトろ過した。有機層を水 100 ml で 2 回洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥した後、溶媒を濃縮した。カラムクロマトグラフィー（クロロホルム）で精製した後、再結晶で精製し（クロロホルム／メタノール）（1-1） 0.5 g を得た。（1-1）の合成



【0081】（1-2）の合成

フェナントレンホウ酸エステル 1.5 g、1, 3, 5-トリブロモベンゼン 0.47 g、炭酸ナトリウム 1.6 g、トリフェニルホスフィン 0.07 g、パラジウムカーボン 0.07 g にジエチレングリコールジメチルエーテル 30 ml、水 30 ml を加え還流撹拌した。6 時間後、反応溶液をクロロホルム 200 ml、一規定塩酸水 200 ml で希釈し、セライトろ過した。有機層を水 100 ml で 2 回洗浄し、硫酸ナトリウム※

*1) の蒸着膜を作製し、その膜蛍光を測定したところ、膜蛍光極大波長 λ_{max} は 480 nm であった。化合物のガラス転移点 (Tg) を測定したところ、164℃ であった。

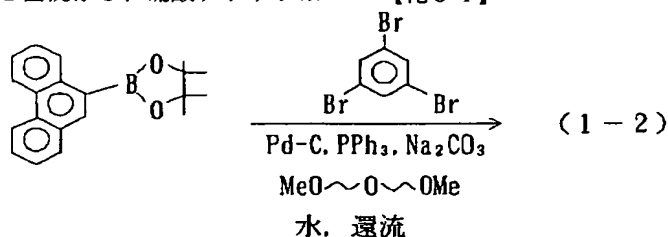
【0080】

【化33】

※ムで乾燥した後、溶媒を濃縮した。カラムクロマトグラフィー（ヘキサン／酢酸エチル系）で精製した後、再結晶で精製し（クロロホルム／メタノール）（1-2） 1.0 g を得た。MS スペクトルを測定し、（1-2）の構造を確認した。（1-2）の蒸着膜を作製し、その膜蛍光を測定したところ、膜蛍光極大波長 λ_{max} は 380 nm であった。

【0082】

【化34】



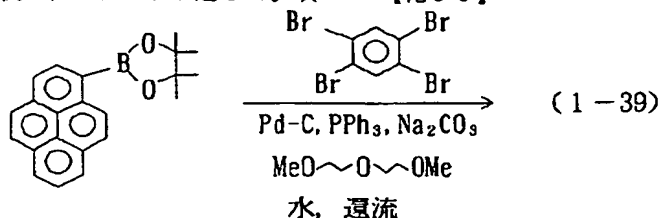
【0083】（1-39）の合成

ビレンホウ酸エステル 1.0 g、1, 2, 4, 5-テトラブロモベンゼン 0.28 g、炭酸ナトリウム 0.88 g、トリフェニルホスフィン 0.05 g、パラジウムカーボン 0.05 g にジエチレングリコールジメチルエーテル 30 ml、水 30 ml を加え還流撹拌した。6 時間後、反応溶液をクロロホルム 200 ml、一規定塩酸水 200 ml で希釈し、セライトろ過した。★

★有機層を水 100 ml で 2 回洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥した後、溶媒を濃縮した。カラムクロマトグラフィー（クロロホルム）で精製した後、再結晶で精製し（クロロホルム／メタノール）（1-39） 0.4 g を得た。MS スペクトルを測定し（1-39）の構造を確認した。

【0084】

【化35】

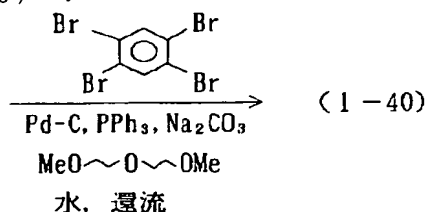
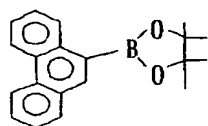


【0085】（1-40）の合成

フェナントレンホウ酸エステル 1.15 g、1, 2,

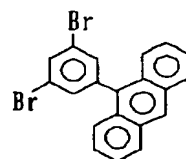
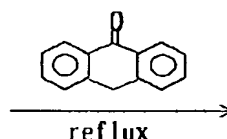
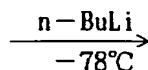
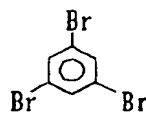
4, 5-テトラブロモベンゼン 0.35 g、炭酸ナトリウム 0.96 g、トリフェニルホスフィン 0.07

g、パラジウムカーボン 0.07 g にジエチレングリコールジメチルエーテル 30 ml、水 30 ml を加え還流撹拌した。6 時間後、室温に冷却し、セライトろ過した。ろ別した固体をクロロホルムに溶解し、セライトろ過し、パラジウムカーボンを除去した。カラムクロマトグラフィー（クロロホルム）で精製した後、再結晶で精製し（クロロホルム/メタノール）（1-40）*

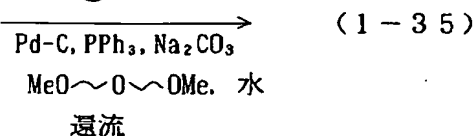
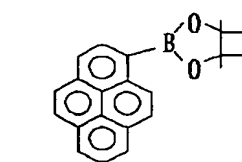


【0087】(1-35) の合成

1, 3, 5-トリブロモベンゼン 25 g にジエチルエーテル 250 ml を加え、窒素気流下 -78℃ に冷却した。n-ブチルリチウム (1.6 M ヘキサン溶液) 52 ml を滴下し、室温に昇温した。アンスロン 15.4 g を分割添加し、加熱還流下 3 時間撹拌した。室温に冷却した溶液に酢酸エチル 500 ml、一規定塩酸水 300 ml を加え、有機層を分取した。有機層を飽和食塩水 300 ml で洗浄した後、濃縮した。カラムクロマトグラフィー（クロロホルム）で精製し中間体 A 1.5 g を得た。ピレンハウ酸エステル 0.84 g、化合物 A 0.5 g、炭酸ナトリウム 0.51 g、トリフェニル※



化合物 A



【0089】(1-37) の合成

1, 3, 5-トリブロモベンゼン 10 g にジエチルエーテル 150 ml を加え、窒素気流下 -78℃ に冷却した。n-ブチルリチウム (1.6 M ヘキサン溶液) 41.7 ml を滴下し、室温に昇温した。アンスロン 13.0 g を分割添加し、加熱還流下 3 時間撹拌した。ジエチルエーテルを蒸留除去し、トルエン 200 ml、パラトルエンスルホン酸 0.1 g を加え加熱還流下 3 時

* 0.5 g を得た。MS スペクトル測定により (1-40) の構造を確認した。(1-40) の蒸着膜を作製し、その膜蛍光を測定したところ、膜蛍光極大波長 λ_{max} は 440 nm であった。

【0086】

【化36】

※ホスフィン 0.05 g、パラジウムカーボン 0.05 g にジエチレングリコールジメチルエーテル 30 ml、水 30 ml を加え還流撹拌した。6 時間後、室温に冷却し、セライトろ過した。ろ別した固体をクロロホルムに溶解し、セライトろ過し、パラジウムカーボンを除去した。カラムクロマトグラフィー（クロロホルム）で精製した後、再結晶で精製し（クロロホルム/メタノール）(1-35) 0.3 g を得た。MS スペクトル測定により (1-35) の構造を確認した。

【0088】

【化37】

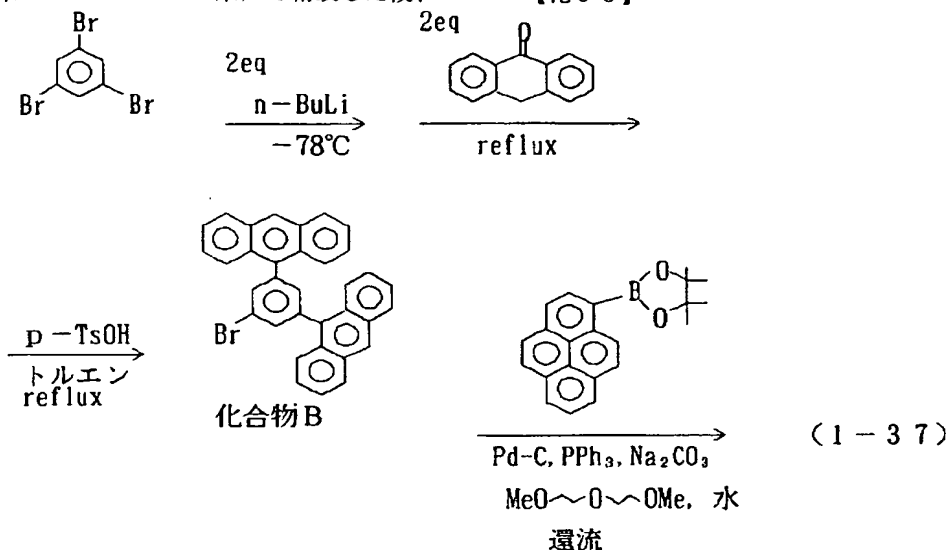
間撹拌した。室温に冷却した溶液にクロロホルム 300 ml、水 300 ml を加え、有機層を分取、濃縮した。カラムクロマトグラフィー（クロロホルム）で精製した後、晶析し（クロロホルム/ヘキサン）、中間体 B 2.0 g を得た。ピレンハウ酸エステル 0.27 g、化合物 B 0.4 g、炭酸ナトリウム 0.17 g、トリフェニルホスフィン 0.05 g、パラジウムカーボン 0.05 g にジエチレングリコールジメチルエーテル

30 ml、水 30 ml を加え還流撹拌した。6 時間後、室温に冷却し、セライトろ過した。ろ別した固体をクロロホルムに溶解し、セライトろ過し、パラジウムカーボンを除去した。カラムクロマトグラフィー（ヘキサン／酢酸エチル系 → クロロホルム系）で精製した後、*

*再結晶で精製し（クロロホルム／メタノール）（1-37）0.1 g を得た。MS スペクトル測定により（1-37）の構造を確認した。

【0090】

【化38】



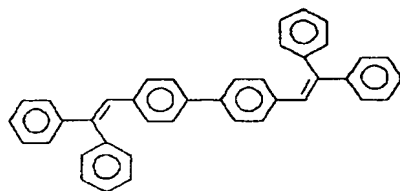
【0091】比較例1

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 α -NPD（N，N'-ジフェニル-N，N'-ジ（ α -ナフチル）-ベンジジン）を40 nm蒸着し、この上に、ジスチリル化合物 b を20 nm蒸着し、この上にアゾール化合物 c を40 nm蒸着した。有機薄膜上にパターンニングしたマスク（発光面積が4 mm×5 mmとなるマスク）を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀=10：1を50 nm共蒸着した後、銀50 nmを蒸着した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用い

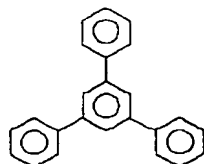
て、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長を浜松フォトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。その結果、色度値（0.15，0.20）の青緑色発光が得られ、最高輝度1130 cd/m²の輝度が得られた。窒素雰囲気下1日放置したところ、膜面の白濁が観察された。

【0092】

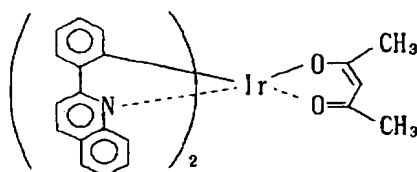
【化39】

41
化合物b

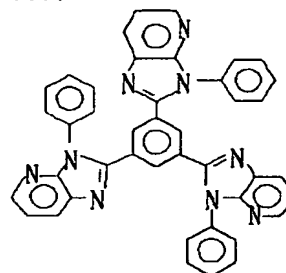
化合物d



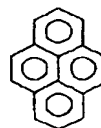
化合物f



化合物c



化合物e



【0093】比較例2

化合物bの代わりに化合物dを用い、比較例1と同様に素子作製した。有機薄膜が白濁し、素子評価不可であった。

比較例3

化合物bの代わりに化合物eを用い、比較例1と同様に素子作製した。有機薄膜が白濁し、素子評価不可であった。

【0094】実施例1

化合物bの代わりに、本発明の化合物(1-1)を用い、比較例1と同様に素子作製評価した。その結果、(0.17, 0.31)の青緑色発光を得、最高輝度12740 cd/m²を得た。窒素雰囲気下1日放置しても有機膜は透明であった。

実施例2

化合物bの代わりに、本発明の化合物(1-8)を用い、比較例1と同様に素子作製評価した。その結果、(0.16, 0.20)の青緑色発光を得、最高輝度6110 cd/m²を得た。窒素雰囲気下1日放置しても有機膜は透明であった。

実施例3

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 α -NPD (N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(α -ナフチル)-ベンジジン)を40 nm蒸着し、この上に、ジスチリル化合物bと本発明の化合物(1-1)を20 nm共蒸着し(ジスチリル化合物b : (1-1) = 50 :

1)、この上にアゾール化合物cを40 nm蒸着した。比較例1と同様に金属蒸着評価した。その結果、(0.16, 0.20)の青緑色発光を得、最高輝度11900 cd/m²を得た。窒素雰囲気下1日放置しても有機膜は透明であった。

実施例4

ポリ(N-ビニルカルバゾール)40 mg、PBD (p-tert-ブチルフェニル-ビフェニル-1, 2, 4, -オキサジアゾール)12 mg、本発明の化合物(1-21)1 mgをジクロロエタン3 mlに溶解し、洗浄した基板上にスピコートした(2000 rpm, 5 sec)。比較例1と同様に陰極を蒸着、評価したところ、(0.17, 0.20)の青緑色発光を得、最高輝度2710 cd/m²が得られた。

実施例5

化合物bの代わりに、本発明の化合物(1-27)を用い、比較例1と同様に素子作製評価した。その結果、(0.16, 0.22)の青色発光を得、最高輝度6170 cd/m²を得た。窒素雰囲気下1日放置しても有機膜は透明であった。

【0095】実施例6

化合物bの代わりに、本発明の化合物(1-40)を用い、比較例1と同様に素子作製評価した。その結果、(0.18, 0.18)の青色発光を得、最高輝度7550 cd/m²を得た。窒素雰囲気下1日放置しても有機膜は透明であった。

実施例7

化合物bの替わりに、本発明の化合物(1-35)を用い、比較例1と同様に素子作製評価した。その結果、(0.20, 0.28)の青緑色発光を得、最高輝度3980cd/m²を得た。窒素雰囲気下1日放置しても有機膜は透明であった。

実施例8

化合物bの替わりに、本発明の化合物(1-34)を用い、比較例1と同様に素子作製評価した。その結果、(0.19, 0.22)の青色発光を得、最高輝度2710cd/m²を得た。窒素雰囲気下1日放置しても有機膜は透明であった。

実施例9

化合物bの替わりに、本発明の化合物(1-40)を用い、比較例1と同様に素子作製評価した。その結果、(0.18, 0.18)の青色発光を得、最高輝度3240cd/m²を得た。窒素雰囲気下1日放置しても有機膜は透明であった。

実施例10

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 α -NPD

(N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(α -ナフチル)-ベンジジン)を40nm蒸着し、この上に、化合物(1-2)、化合物fを10対1の比率で20nm共蒸着した。この上にアゾール化合物cを40nm蒸着した。比較例1と同様に陰極蒸着、素子評価した。その結果、色度値(0.60, 0.39)の赤色発光が得られ、最高輝度18700cd/m²が得られた。外部量子効率を算出したところ12.0%であった。同様に、本発明のその他の化合物含有EL素子を作製・評価したところ、本発明の化合物がEL素子材料として高機能(輝度、耐久性、成膜性)を有することが確認できた。

【0096】

【発明の効果】本発明の化合物は有機EL用材料として使用可能であり、また、本発明の化合物は医療用途、蛍光増白剤、写真用材料、UV吸収材料、レーザー色素、カラーフィルター用染料、色変換フィルター等にも適用可能である。

フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁷

識別記号

F I

テームコード(参考)

C 0 7 C 15/38

C 0 7 C 15/38

C 0 7 D 251/24

C 0 7 D 251/24

263/62

263/62

333/08

333/08

H 0 5 B 33/14

H 0 5 B 33/14

B

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.